

PI WO 8400156 A 19840119 (198404)\* EN 38p  
 RW: AT BE CH DE FR GB LU-NL SE  
 W: JP  
 EP 112385 A 19840704 (198427) EN  
 R: AT BE CH DE FR GB LI LU NL SE  
 JP 59501109 W 19840628 (198432)  
 CA 1204580 A 19860520 (198625)  
 US 4737348 A 19880412 (198817)  
 EP 112385 B 19880518 (198820) EN  
 R: AT BE CH DE FR GB LI LU NL SE  
 DE 3376645 G 19880623 (198826)  
 ADT WO 8400156 A WO 1983-US920 19830620; EP 112385 A EP 1983-902371 19830620;  
 JP 59501109 W JP 1983-502503 19830620; US 4737348 A US 1984-618712  
 19840608  
 PRAI US 1982-390920 19820622; US 1984-618712 19840608; US 1985-749661  
 19850628; US 1986-932029 19861118; US 1988-153126 19880208  
 REP 2.Jnl.Ref: US 4342284; US 4343772; DE 1045995; DE 2626446; DE 752280; GB  
 745698; US 3069241; US 3078150; US 4176166  
 IC C01B003-04; C01B033-02; C09C003-00  
 AB WO 8400156 A UPAB: 19930925  
 Reactor comprises (a) walls defining a space; (b) a heater heating the  
 reactor walls to provide a temp. above Si m.pt. in the reactor space; (c)  
 a cooled precursor gas inlet tube outside the reactor, having an inlet to  
 the reactor pref. comprising a thin septum; (d) a byprod. gas outlet,  
 located w.r.t. the inlet to provide a smooth flow of precursor gas in the  
 reactor; and (e) a molten Si outlet.  
 Molten elemental Si is prepd. by (i) providing Si-contg. precursor  
 gas, pref. SiH<sub>4</sub>, at a first temp. below its decomposition temp.; (ii)  
 providing a reactor chamber heated to a second temp. above Si m.pt.; (iii)  
 abruptly heating the precursor gas from first to second temp. by  
 introduction to the chamber through a cooled inlet; (iv) maintaining a  
 smooth axial flow of precursor gas through the chamber while allowing it  
 to thermally decompose to form molten Si; (v) removing unreacted gas and  
 by-prod. gas, pref. H<sub>2</sub>, from the chamber; and (vi) recovering molten Si.  
 Solar or semiconductor grade Si is prepd. in continuous process, with

the cooled inlet avoiding clogging. Pref. materials avoid Si  
 contamination, and yield is around 100%.  
 O/4

⑬ 日本国特許庁 (JP)  
⑭ 公表特許公報 (A)

⑮ 特許出願公表

昭59-501109

⑯ Int. Cl.<sup>3</sup>  
C 01 B 33/02  
# C 01 B 3/04

識別記号

庁内整理番号  
7059-4G  
7918-4G

⑰ 公表 昭和59年(1984)6月23日

部門(区分) 3(1)  
審査請求 未請求  
予備審査請求 未請求  
(全 10 頁)

⑱ ソーラーグレードの珪素を製造するための装置と方法

⑲ 特 願 昭58-502503  
⑲ 出 願 昭58(1983)6月20日  
⑲ 翻訳文提出日 昭59(1984)2月22日  
⑲ 国際出願 PCT/US83/00944  
⑲ 国際公開番号 WO 84/00156  
⑲ 国際公開日 昭59(1984)1月19日  
優先権主張 ⑳ 1982年6月22日㉑米国(US)  
㉑ 390920  
㉒ 発 明 者 レビン・ハリー  
アメリカ合衆国91367カリフォルニア州

⑲ 出 願 人 ウッドランド・ヒルズ・フライヤー・ストリート19831  
レビン・ハリー  
アメリカ合衆国91367カリフォルニア州  
ウッドランド・ヒルズ・フライヤー・ストリート19831  
⑲ 代 理 人 弁理士 浅村皓 外2名  
⑲ 指 定 国 A.T(広域特許), B.E(広域特許), C.H(広域特許), D.E(広域特許), F.R(広域特許), G.B(広域特許), J.P.L.U(広域特許), N.L(広域特許), S.E(広域特許)

19

請 求 の 範 囲

1 シランのごとき前駆体ガスの熱反応により、珪素及び副生ガス、例えば水を生成させて元素珪素を製造するための反応器装置であつて、

反応器空間を限定する壁を有する反応器；

該反応器空間の内部壁面が珪素の熔融温度を超えるように、反応器の壁を加熱するための加熱要素；

前記の前駆体ガスを反応器空間内に導入し、かつ、前駆体ガスが、加熱された反応器空間内に有効に送りこまれるまで、前駆体ガスの流量をその熱分解温度よりも低い温度に保つための、反応器と作動的に連携した前駆体ガス導入要素；

反応器空間から副生ガスを排出させるための副生ガス排出要素；及び

生成した熔融珪素を反応器から導出するための、反応器と作動的に連携した熔融珪素排出要素（但し、前記の前駆体ガス導入要素と副生ガス排出要素とは、前駆体ガスの実質的にスムーズな流れが反応器内に生じるような相互関係の下に取組まれているものとす）；

からなることを特徴とする前記の反応器装置。

2 加熱要素が前記の内部温度を約1500～1800℃に保つのに適している、請求の範囲1の反応器装置。

20

3 加熱要素が前記の内部温度を約1600～1800℃に保つのに適している、請求の範囲2の反応器装置。

4 反応器の壁が、熔融珪素との反応によつて炭化珪素を形成し、かつ、その壁の上に少なくとも炭化珪素の被覆をもちたらしめるカーボン又は黒鉛材料からなる、請求の範囲1の反応器装置。

5 反応器が一つの円筒からなる、請求の範囲1の反応器装置。

6 反応器が実質的に直立した細長の中空体からなり、そして導入要素が細長体の実質的に底部で前駆体ガスを導入し、反応器内実質的に軸方向のガス流を生じさせるのに適している、請求の範囲1の反応器装置。

7 熔融珪素排出要素が、細長体の実質的に底部から熔融珪素を重力の作用で導出させるのに適している、請求の範囲6の反応器装置。

8 反応器が細長円筒状中空体からなる、請求の範囲7の反応器装置。

9 導入要素には、効率的に冷却された導入管が含まれてその中を前駆体ガスが流れ、また熔融珪素も含まれてその片側が冷却された導入管と接続し、その別の側に加熱された反応器空間に導出し、しかもその導出側の温度が正常の融点よりも高温に保たれるのに該熔融珪素が適している、請求の範囲1の反応器装置。

10 熔融珪素がカーボン又は黒鉛の壁からなる、

請求の範囲9の反応器装置。

11. 導入要素がジャケット要素を具えた筒体からなり、そのジャケット要素内に冷却剤を循環させる、請求の範囲9の反応器装置。

12. 直接溶融反応素にシランガスを熱分解させる反応器装置であつて、

カーボンは黒鉛材料で作られ、反応器空間を囲む壁を有する細長反応器；

前記の反応器空間内の温度を溶融温度よりも高く保つための、反応器と作動的に連動した加熱要素；

少なくとも有意量のシランガスを含むガス組成物を反応器内へ導入し、反応器内に実質的に軸方向の流れを得るためのシランガス導入要素であつて、しかも前記のガス組成物が加熱された反応器空間内に有効に移されるまで、該ガス組成物をシランガスの分解温度よりも低い温度に保つための冷却要素も含まれている筒体の導入要素；

前記の実質的に軸方向のガス流を維持しつつ、未反応ガス及び副生ガスをすべて前記の反応器空間から排出させるために反応器と作動的に連動し、かつ、前記の導入要素から離れた位置に配置されたガス排出要素；及び

溶融生成物を反応器から取出すための、反応

19. 反応チャンバー内において、適量の前駆体ガス組成物を熱反応させて溶融要素を直接製造する方法であつて、

前記の反応チャンバーの内部を溶融の融点よりも実質的に高い第1温度範囲内に保ち；

反応チャンバー内に前駆体ガス組成物の実質的に軸方向の流れを維持し、その間に前駆体ガス組成物が熱反応を受けて溶融要素を生じるようにし；

未反応の溶融体ガス組成物及び副生ガスを反応チャンバーから排出させ；そして

溶融要素を反応チャンバーから取出す；

前工程からなることを特徴とする前記の方法。

20. 第1温度範囲が約1500～1800℃である、請求の範囲19の方法。

21. 第1温度範囲が約1600～1800℃である、請求の範囲20の方法。

22. 第2温度範囲が350℃未満である、請求の範囲19の方法。

23. 前駆体ガス組成物がシランからなる、請求の範囲19の方法。

24. 前駆体ガスの熱反応温度よりも低い第2温度範囲内にガス組成物を保つ工程、及び冷却された導入管に前駆体ガス組成物を送る工程がさらに含まれ、それにより、加熱された反応チャンバー内に前駆体ガス組成物が導入されるまで、前記の第2温度範囲が維持さ

器と作動的に連動した溶融要素排出要素；

からなることを特徴とする前記の反応器装置。

13. 加熱要素が反応器空間内の温度を約1500～1800℃に保つのに適している、請求の範囲12の反応器装置。

14. 加熱要素が反応器空間内の温度を約1600～1800℃に保つのに適している、請求の範囲13の反応器装置。

15. 反応器が実質的に円筒状の中実体からなる、請求の範囲12の反応器装置。

16. 反応器が実質的に直立した細長体であり、導入要素が該細長体の実質的に頂部に配置され、そして溶融要素排出要素が該細長体の実質的に底部に配置されている、請求の範囲12の反応器装置。

17. 導入要素が、加熱された反応器空間の実質的に外側に配置された管を含み、該管が冷却剤によつて冷却され、そして導入要素には、前記の管に接続し、かつ、反応器の加熱された空間にも露出している絶縁層要素も含まれ、そして溶融要素の排出部分が従来の溶融温度よりも実質的に高温である、請求の範囲12の反応器装置。

18. 隔熱要素がカーボン又は黒鉛の塊状体からなり、その片側は前記の管の吐出し末端部に接続し、そして他の側は反応器空間に露出している、請求の範囲17の反応器装置。

れる、請求の範囲19の方法。

25. 比較的等手の隔壁がガス組成物を通過させる工程から前記の導入の工程となり、該隔壁が、冷却された導入管に隣接したその片側末端において、実質的に第2温度範囲内の温度を有し、そして反応チャンバーの内部に隣接した他の末端において、実質的に第1温度範囲内の温度を有している、請求の範囲24の方法。

26. 前駆体ガス組成物がシランからなる、請求の範囲25の方法。

27. 隔壁がカーボン又は黒鉛材料からなる、請求の範囲24の方法。

28. 実質的に軸方向の流れが、地球の重力の方向に実質的に平行な、実質的に軸方向の壁下流である、請求の範囲19の方法。

29. カーボン又は黒鉛の壁を有する反応器内において、シランガスを熱分解させて溶融要素を直接製造する方法であつて、

反応器の内部温度を約1500～1800℃に保ち；

少なくとも有意量のシランガスを含むガス組成物を約350℃未満に保ち；

ガス組成物を反応器の内部へ急速に導入することにより、ガス組成物の温度を350℃未満から約1500℃をこえる温度まで急激に上げ；

実質的に軸方向で実質的に軸方向のガス組成物

の流れを反応器内に維持することにより、シランガスを溶解媒液及び水素に熱分解させ、それにより、反応器のカーボン又は黒鉛の壁が溶解媒液と漸次反応して炭化媒液を形成するようにし、

未反応のガス組成物及び副生水素ガスを反応器から流出させ、そして

生成した溶解媒液を反応器から液状で取出す；  
請求項からなることを特徴とする前記の方法。

30. 軸方向のガス組成物の流れが、地球の重力の方向に実質的に平行な下流である、請求の範囲29の方法。

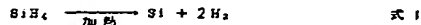
31. ガス組成物を350℃未満に保つ工程が、反応器を通じてはいるが、加熱された反応器の内部の外側に位置を占める冷却された導入管にガス組成物を通す工程を包含している、請求の範囲30の方法。

32. 温度を急激に上げる工程が、比較的薄手の隔壁を經由してガス組成物を反応器の内部へ通す工程を包含し、該隔壁の一つの末端部が冷却された導入管と接触していて、導入管と実質的に同じ温度範囲内にあり、そして隔壁の他の末端部が反応器の内部に隣接していて、該内部と実質的に同じ温度範囲内にあり、請求の範囲31の方法。

33. 隔壁がカーボン又は黒鉛がらなり、それにより、溶解媒液が隔壁と反応して炭化媒液を形成する、請求の範囲32の方法。

体の元素化合物（例えば $\text{SiO}_2$ ）をガス状又は沸点の低い液体元素化合物、例えば四塩化硅素（ $\text{SiCl}_4$ ）、トリクロロシラン（ $\text{SiHCl}_3$ ）及びシラン（ $\text{SiH}_4$ ）に置き換える。これらのガス状又は低沸点液体元素化合物は、次の分密その他の方法によつて比較的容易に精製される。

ソーラーグレードの純度を有する元素硅素製造の第二工程においては、前記の精製済み元素化合物を気相で反応させ、元素硅素と通常ガス状の副産物とを得る。例えば、シランガスを式1に従つて熱分解すると、硅素と水素ガスとが得られる。



先行技術においては、今まで上記の方法を用いて固体の元素硅素を得ていた。しかし、これらの方法では密着の密度がきわめて低い硅素の製造粒子が得られ、これらは固くて、効率的かつ運搬的に取扱うことができない。ガス→固体熱反応法に付随する問題の他の例は、反応器の壁面上に好ましくない固い硅素の皮膜が形成すること、及び前記の問題や他の問題に起因して操作がしばしば中断されることである。例えば、ソーラーグレードの硅素を化学的に製造するのに最も広く用いられている先行技術である「モイソン」(Moissan)法による場合、トリクロロシラン（ $\text{SiHCl}_3$ ）と水素（ $\text{H}_2$ ）ガスを反応させる反応器内に置かれたロッドの表面に元素硅素の結晶がエピタキシャル成長を行う。しか

## ソーラーグレードの硅素を製造するための装置と方法

### 発明の背景

#### 1. 発明の分野

本発明は、適当な前駆体ガス組成物の熱反応により、ソーラー及び半導体グレードの硅素を製造する方法及び装置に関する。より詳しくは、本発明はシランのとき適当な前駆体ガスを熱分解させ、液相におけるソーラー及び半導体グレードの硅素を連続的に製造するための方法及び装置に関する。

#### 2. 先行技術の簡単な説明

周知のごとく、適当な量のドーピング剤で適度にドーピングされた高純度の硅素は、最も広く用いられる半導体及びソーラー電池の原料である。太陽エネルギーへの依存度が高まりつつある最近の傾向から見て、適正価格におけるソーラー電池グレードの硅素に対する需要は益々でない。実務問題として、ソーラー電池の価格が高すぎるために、大規模な発電を行えるに對らないのは、ソーラー電池級の硅素が適当な価格で入手し得ないことが原因となつている。

ソーラー電池又は半導体グレード（以下ソーラーグレードと称する）の硅素は、通常2工程による化学的方法で製造される。最初に、地殻から豊富に採れる固

し、この方法でさえ、ロッド上に沈着した固体硅素を取出し、また反応器を浄化するため、ときどき作業を中断せざるを得ない。

固体の硅素を製造するための先行技術による化学的方法の別の重要な欠点は、得られる生成物が通常充分に大粒の結晶でないために、半導体又はソーラー電池に直接利用するのに向いていないことである。従つて、先行技術の方法で製造された固体の硅素は、別の工程で溶解してからソノクラムスキーの結晶造形法でその他を用い、大粒結晶（理想的には単結晶）のインゴット、リボンその他に実装させる必要がある。従つて、当業者によつてよく認識されるとおり、従来のソーラー電池を製造するための総合的な先行技術による方法は、益々しくない程度に大量のエネルギー投入を必要とする。

上記の問題を克服又は軽減する目的で、熱反応法において固体でなくて溶解状態の硅素を得る試みが先行技術において二、三なされた。例えば、1977年12月2日に公開された特開昭52-144959号又は、トリクロロシラン（ $\text{SiHCl}_3$ ）又は四塩化硅素（ $\text{SiCl}_4$ ）と水素ガス（ $\text{H}_2$ ）とを反応させる反応器内に、溶解媒液（高純度の予備製造硅素から得られたもの）を流す方法が開示されている。反応器内に導入される前記、四塩化硅素（ $\text{SiCl}_4$ ）又はトリクロロシラン（ $\text{SiHCl}_3$ ）は300℃～500℃に加熱され、そして

水素ガス( $H_2$ )は $1200^{\circ}\sim 1400^{\circ}C$ に加熱される。反応容器のガス室部分における温度を $1050^{\circ}\sim 1150^{\circ}C$ に保つことにより、ガス相の反応によつて固体の炭素遊基が容器内で形成される。しかし、固体の遊基は溶融状態中に落下して溶解する。この方法ですぐ判る欠点は、シラン( $SiH_4$ )から遊基を製造するのに適していないことである。なぜならば、反応容器に導入される前の予熱加熱の過程において、シランがすでに有意の熱分解をしはじめるからである。さらに、その方法に用いられる反応体からは、元素遊基が比較的収収面で得られるにすぎない。さらにまた、平衡状態に達するまでに必要なガス状反応体の滞留時間が比較的長いことと鑑み、この方法は連続方式でなくバッチ方式である。恐らくは、本発明者の知る限り、それやこれらの理由によつてこの先行技術による方法は、中等程度の工業的受入れすら得られなかつたのである。

1980年2月29日出願の米国特許出願第126,063号は、適当な組成含有前駆体ガスの熱反応を利用し、連続操作式反応器内で溶融遊基を製造する試みを代表するものである。その開示するところによれば、シランのような前駆体ガスは、らせん状反応器内における外側の前進方向の渦巻き内を流れる。水素のような還元ガスは、内側の逆進方向の渦巻き内を流れる。反応器の壁は、遊基の融点よりも高温に保

たれる。溶融遊基は反応器の壁を伝つて下方で流れてプールに集められ、そこから取出される。内径約0.06インチの冷却された噴射管を利用し、反応器の内径内筒表面に対して逆進方向に前駆体ガスの導入を行う。同進ガスの逆進方向渦巻きを除去するために、反応器の上部の実質的な中心に渦巻きフゾインダー管が配設されている。

上記の特許出願明細書に記載の反応器は、溶融遊基が連続的に製造されるように設計されているとはいふものの、決して問題がないというわけではない。より詳しくは、固体の遊基プラグが内壁に形成されることに起因して噴射管がしばしば閉塞され、また噴出する前駆体ガス中に、微細に分散した固体の遊基粒子が比較的大量に含まれる。

ソーラーグレードの遊基の製造に関する他の記事は、次のような刊行物に掲載されている：カリホルニア・インスチテュート・オブ・テクノロジーのジェット・プロパルション・ラボラトリー(Jet Propulsion Laboratory, California Institute of Technology)から1978年10月に出版されたH.レビン(Levin)著ローコスト・ソーラー・アレイ・プロジェクト(Low-cost Solar Array Project)5101-87、「シランの熱分解による遊基の形成」(Silicon Formation by Pyrolysis of Silane)、連続炭素熱分解装置についての研究に関する中間報告(Interim Report of the

Continuous Flow Pyrolysis Study)、及びカルホルニア・インスチテュート・オブ・テクノロジーのジェット・プロパルション・ラボラトリーから1978年3月に出版されたオドネル(O'Donnell)ら「溶融遊基と炭素する種々の耐火物の相溶性に関する研究」(Compatibility Studies of Various Refractory Materials in Contact with Molten Silicon)(JPL出版物78-18)。

前記の説明から明らかなごとく、ガス状の原料物質から溶融遊基を化学的に製造するための連続操作が可能である。効率的な方法及び設備が、先行技術において依然として希望されている。そのような方法及び設備が本発明によつて提供される。

#### 発明の要旨

本発明の一つの目的は、適当な組成含有の前駆体ガスから溶融遊基を効率的に連続的に製造する装置及び方法を提供することである。

本発明の別の目的は、溶融遊基を連続的に製造するための装置であつて、長期に亘つて溶融遊基にさらされても容易に耐えるような装置を提供することである。

これらをはじめ他の目的及び利点は、元素遊基の相融温度よりも高温に保たれた細長反応器内の実質的な前方に、適当な組成含有の前駆体ガスの実質的なムーブメントが保たれるような反応器装置によつて達成される。前駆体ガスの熱反応によつて溶融遊基が形成

生成し、生成遊基は反応器の壁を伝つて流下し、その底部から液体状態で取出される。

本発明の一つの局面においては、反応器内に前駆体ガスを噴射する反応器の導入管が効率的に冷却されることにより、前駆体ガスが反応器内に入る前に熱分解によつて遊基を生成することを防止している。導入管に付着した比較的薄手の隔壁(membrane)の片断は、導入管と実質的に同じ温度範囲内にあり、一方隔壁の他の側は反応器の内部に対して露出し、反応器と実質的に同じ範囲内にある。その結果、反応器内に入る前駆体ガスの温度がきわめて急激に変化するため、固体の遊基プラグの形成による導入管の閉塞が実質的に完全に回避される。

本発明の別の局面によれば、反応器の壁が無炭又はカーボン材によつて製造されるが、これらの材料は、反応器の液体遊基に対する初期暴衝の間に耐圧力が高い炭化遊基層によつて急速に保護されることが見いだされた。

上記のごとき目的及び利点と共に、本発明の要旨は、同じ番号については同じ番号を付した図面と関連させた下記の説明を参照することにより、最もよく理解することができる。

#### 図面の簡単な説明

第1図は、外側シリンダーで囲まれた本発明の反応器装置を示す模式的断面図であり：

第2図は、本発明の反応器装置を示す模式的断面図であり；

第3図は、本発明の反応器装置に送られる前駆体ガス導入管アセンブリを示す模式的斜視図であり；そして

第4図は、本発明の反応器装置に送られる前駆体ガス導入管アセンブリを示す断面図である。

#### 好ましい態様の説明

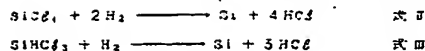
化学技術の熟練者であれば誰でも本発明を利用できるように、図面と組合せて以下本明細書の記述を行う。ここに開示される本発明の態様は、商用的環境下で本発明を実施するのに最善の形態であると本発明者が考えているものであるが、本発明のパラメーターの範囲内において種々の修正が可能であることを理解すべきである。

さて、図面特に第1図及び第2図の模式的断面図を参照するに、本発明の反応器装置10が図に示されている。本発明の反応器装置10は、通常の元素含有前駆体ガス組成物の熱反応による連続的方法において、高純度の炭化硅素を製造するのに適している。反応器装置10内で行われる新規な方法において、いくつかの公知の化学反応が利用される。例えば、それぞれ式II及びIIIに従い、水素( $H_2$ )によるトリクロロシラン( $SiCl_3H$ )又はトリクロロシラン( $SiHCl_3$ )の還元により、炭素が装置10内において生成される。

その目的のためには、メサレンス鋼製の壁体14は、反応器装置10を取囲む適当な絶縁材(図示せず)を内蔵していてもよい。アルゴンであるのが好ましい不活性ガスの導入及び排出管が第1図に模式的に示されており、それぞれ16及び18の参考番号がつけられている。

また保護の外側シリンダー12には、前駆体ガス、副生ガス及び反応生成物である溶融炭素20を適当な開口部を有している。模式的な第1図において、前駆体ガスのシラン用の導入管アセンブリには参考番号22、副生水素用の排出管には参考番号24、そして溶融炭素用排出管には参考番号26がつけられている。最後に、外側シリンダー12には、内側の反応器装置10を囲む「杭垣」(picket fence)型の抵抗加熱器30に電熱加熱用の電流を流す銅その他の導管28をさしこむのに適した開口部も設けられている。抵抗加熱器30と内側反応器装置10とは、高抵抗耐える電気絶縁材31によって互に隔離されている。

今度は主として第2図の模式的断面図を参照するに、内側反応器装置10が詳細に示されている。反応器装置は細長の中空体であり、ここに記載の好ましい態様に示されるごとく、該装置は、その直径に比べて長さが著しくそれを包める中空円筒体であるのが好ましい。本発明の反応器装置10の典型的な一例において



しかしながら、本発明の体系10及び方法は、式I(本明細書の序文中に記載したもの)に従ってシランガスの熱分解によつて炭素及び水素ガスを得る連続的製造に最も有利なように計画されている。従つて、以下の例示的説明においては、主として本発明による新規な装置及び方法における、シランの熱分解反応の利用について解説する。なお、以下の記載において、用語「前駆体ガス」及び用語「シラン」を混同して用い、また用語「副生ガス」及び用語「水素」を混同して用いることとする。しかし、本発明の方法で別の化学反応(例えば式II又はIIIの反応)が用いられる場合には、前駆体ガスがシランでなく、また副生ガスもしくはガス類が水素とは異なることを銘記すべきである。

第1図を主として参照するに、本発明の反応器装置10が適当な外側シリンダー12の中に取り付けられているのが判る。外側シリンダー12の主な目的は、反応器装置10が高圧に加熱されている間、不活性ガスの雰囲気内に反応器装置10を包みすることである。外側シリンダー12は、実質的に技術の突進(state-of-the-art)に従つて構成されたものであつてよい。また、外側シリンダー12は、反応器装置10のための断熱効果を有すべきであることはもちろんであり、

は、円筒形の反応器本体、すなわち、反応器32は、長さが157cmであり、内径が7.6cmである。反応器32についてのこの相対的な長さ：径比は、反応器32内の支配的條件下において元素炭素を高収率で得るのに都合がよい熱力学的平衡状態に到達するのに充分な滞留時間が、反応器32内のガス状反応体と与えられるように設計されたものである。事実、本発明の装置内においては、シランガスは実質上100パーセント(100%)の収率で炭素に変換される。

本発明の一つの重要な局面によれば、反応器32は高純度の黒鉛又はカーボン材料で製造され、該材料は反応器32内の支配的條件下において迅速と急速に反応し、炭化硅素(SiC)を形成する。事実、反応器装置10の操作の初期段階で形成される炭素が反応器32の内壁と反応するのを実質的に消費されることが実験によつて見いだされた。反応器壁体上に生じる炭化硅素析出物は、溶融炭素によつてきわめて溶解されやすく、しかも溶融炭素に対する抵抗力がきわめて高い。このことは本発明の反応器装置10のきわめて有利な特徴であり、その理由は、反応器の壁体から剥けこむ物質によつて実質的に汚染されることのない、高純度のソーラーグレードの炭素の形成が可能になるからである。

尚ほ、炭素が溶融炭素が炭素中においてきわめて反応性であると知られていること、及び「万能溶剤」(universal solvent)としばしば称されていることを

述べておく。従来、大抵の先行技術による融着物品の造形等質にあつては、均滑、毛管マイネの他の質と液体溶媒とが反応し、又は溶媒が液体溶媒中に溶解するときに形成される不純物を融着溶媒が含まないようにする問題で苦勞している。しかしながら、本発明においては、入手しやすい黒鉛又はカーボン材料を用いることにより、これらが本発明の方法の過程において「自己変換」(self-convert)し、高度に密着性であつて液体溶媒に対する高抵抗性を有する炭化産物になるため、腐敗の問題は完全に解決された。反応器32の炭素質が炭化産物に変換する初期段階は、反応器の「プライミング」(priming)と名づけられる。

反応器本体32の加熱は、反応器本体32を駆動する「抗腐」型抵抗加熱器30によつて達成される。本発明の反応器装置10の別の態様においては、他の加熱方法を利用することができる。加熱に関する本発明の唯一の腐敗の特色は、産物製造を行つている間、反応器32の内部及び内側壁を産物の溶融温度(1412℃)よりも高く保つことも高温に保たれるのが好ましく、1600°~1800℃に保たれるのが最も好ましい。反応器装置10の操作温度(すなわち、1412℃よりも高温)においては、シランガスの溶媒及び水素への熱分解は比較的急激である。またこの温度においては、熱力学的平衡が炭素産物の形成に好都合であつて、實質

るのに直接利用される。

第1図及び第2図に示すごとく、反応器装置10は實質的に直立状態で配置されることにより、反応器本体上の溶融産物20の流れが重力によつて誘引されるようにすべきである。

さて第3図及び第4図を主として参照するに、シランガス導入用のダクト又は管アッセンブリ22が詳細に示されている。この導入管アッセンブリ22は、連続的、かつ、閉塞が實質的に生じないような方法でシランガスを反応器32内に供給するのに特に好適である。第2図に示されるごとく、導入管アッセンブリ22は、反応器32の加熱された内部空間の外側に位置を占めるようにして、反応器32の上壁34の實質的中心に配置される。

導入管アッセンブリ22は、シランガスの供給源に接続した細長導入管36を含む。導入管36はジャケット38によつて囲まれており、例えば水のような冷却剤がジャケット内を循環する。導入管36の末端及びジャケット38の末端が一緒になり、實質的に平坦で實質的にリング形状の表面40を形成する。

導入管アッセンブリ22のリング形状の表面40は、反応器32の内部に直接露出せず、カーボン又は黒鉛製の隔壁44の片側に接触する。隔壁44は、導入管アッセンブリ22の末端部の形状に實質的に適合する比較的厚手のリング形状の本体からなる。第2図に

上100パーセント(100%)の収率でそれが形成される。

実験には、本発明の方法はさらに高い温度でも実施可能であるため、前記の約1800℃という上限は本発明の方法の限界値ではない。むしろ、約1800℃は、本発明の反応器装置10の材料が損傷しないであらうる上限値である。

本発明の方法についての上記の温度範囲に関してさらに述べると、1300℃よりも低い温度においては、反応器32のカーボン又は黒鉛製の炭化産物への交換速度がきわめて鈍く、反応器32のプライミングに実質的な効果はなからる。従つて、1300℃よりも低い温度で操作される先行技術の反応器にあつては、反応器のきわめて有利な「プライミング」が有差な密度に生じることはない。

実験の結果、本発明の反応器装置10は、周囲温度(反応器を操作しない時点)と1400°~1800℃(操作時点)との間の温度サイクルの繰返しに耐えることが実証された。

反応器32内で形成される産物は溶融相をなし、反応器32の炭化産物の内壁を低つて流下し、その底部に集められる。純粋なソーラーグレードの溶融産物は、反応器32の底部から抜取られ、固化させることなく、ショックスケー式その他の結晶造形装置(図示せず)内で産物のインゴット又はリボン(図示せず)をつく

示すとおり、隔壁44の第2の側46は、反応器32の上壁34の内側表面と同一平面上にある。

隔壁44は、反応器32の高温から導入管36を保護し、反応器32へ送りこまれるシランガスがきわめて急激な温度勾配を経験するための原因をなす。このことは、隔壁44の片側42が導入管36及びジャケット38の有効に冷却された表面40と接触し、導入管36と實質的に同じ温度範囲内にあるからである。隔壁44の他の側46は、反応器32の加熱された内部にさらされ、そして輻射率が高い黒色物質(多孔質)からできているため、反応器32の内部と實質的に同じ温度範囲内に保たれる。

本発明の方法を実施中、シランガスは導入管アッセンブリ22を導いて反応器32へ高圧的に供給される。導入管アッセンブリ22は冷却用ジャケット38内を循環する水によつて冷却される。本発明の一つの重要な局面によれば、導入管36を導いて反応器32へ導入されるシランガスの温度は、350℃よりも低い温度に保たれる。このことは、シランガスが反応器32へ入る前に、シランガスが事前に有意の熱分解をいつさい起こさないようにするのがその目的である。導入管アッセンブリ22が効果よく冷却されやすいように、導入管36及びジャケット38は、例えば銅のように熱伝導率が高い材料を用いて製造される。

カーボン又は黒鉛製の比較的厚手の隔壁44は、導

入管の裏面への炭化炭素粒子の堆積沈着及びそれに伴く導入管や炭化炭素44それ自体の閉塞を回避するのにきわめて効果的である。反応器装置10の操作における「プライミング」段階の過程において、例題44が新しく形成された炭化炭素とやはり反応し、炭化炭素を形成することが経験上判った。

本発明の反応器装置の導入管アセンブリ22は操作中に閉塞しない。前述の米国特許出願第126,043号明細書と開示されている炭化炭素の導入管アセンブリとは対照的に、導入管36の内径はきわめて重要な要素となりうるものである。ここに記載の、反応器が157cmの長さを持つ特定の例においては、導入管36の内径は約1cmであり、また隔壁44の厚さは約2.2cmである。

完全に密封がよい熱力学的平衡状態に實質的に到達すべくシラン-炭化炭素反応が進行するように、加熱反応器32内におけるシランガスの滞留時間が選ばれる。操作中、シランガス及び副生炭素ガスは、反応器32内を實質的にスムーズな、實質的に流れのない、實質的に軸方向の流れとして流動する。炭化炭素20が含まれる、反応器32の下方の貯留部分は、炭素の貯留密度よりも適度に保たれる。炭化炭素は、技術の熟練に従って構成されうる排出管アセンブリ26を通じて反応器装置10から連続的に取出される。炭化炭素20の液面よりも高い所に設けられた、反応

器32の隔壁14上の水素排出管アセンブリ24を通り、副生炭素ガスが反応器32から取出される。

本発明の炭化炭素の製造方法及び方法の主な利点に次のとおりである。反応器32が比較的廉価で純粋なカーボン又は無炭材から容易に製造でき、しかも容易に「プライミング」又は自己変換することにより、非汚染性の炭化炭素のみが露出面となつて炭化炭素のソーラーグレードの炭素と接触する。反応器は、連続的でトラブルのない操作が可能であり、固体炭化炭素の貯留に反応する閉塞を避けることなく、そして炭化炭素した炭素の炭化炭素を除去するための連続的けずり落とし又は浄化作業を必要としない。

反応器装置10についての前記の特定の利点は、低時価プログラム(15kgまで)のソーラーグレードの炭化炭素を製造する能力を有する。さらに大規模な炭化炭素生産プラント用には、本発明の反応器装置10のさらに大形の規模を利用できる。別法として、また好ましくは、低圧炭化炭素等選したと同じ大きさの反応器装置を同時に操作することもできる。

さらにまた、本発明の方法で化学的に得られた炭化炭素は、フッ化炭素系その他の結晶炭化炭素(図示せず)に直接供給できるので、固体炭化炭素を再炭化する手順が省ける。

当業者であれば、上記の装置及び方法についてのいくつかの修正が可能なことは前記の説明から

明らかであろう。従つて、本発明の範囲は、後記の請求の範囲によつてのみ限定されるものと考えらる。

FIG. 1

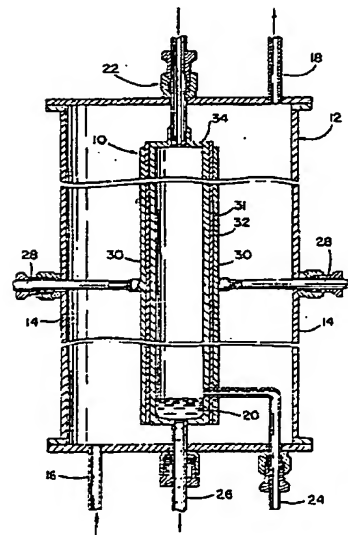


FIG. 3

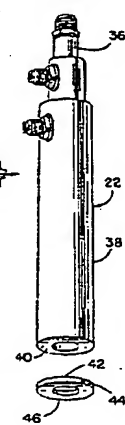




FIG. 2

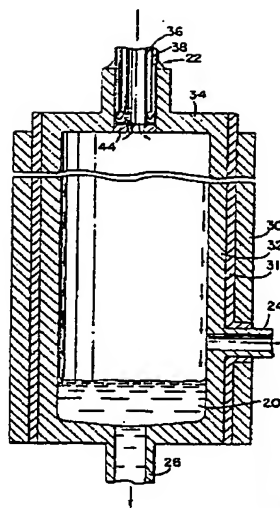
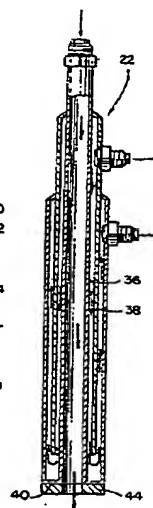


FIG. 4



特許第59-501109(8)  
補正書の翻訳文提出書 (特許法第184条の7第1項)

昭和59年 2月 22日

# 特許庁長官 殿

1. 特許出願の表示  $\text{PCT/JP83/00944}$
2. 発明の名称 ソーラーグレードの珪素を製造するための装置と方法
3. 特許出願人  
住所(通所) アメリカ合衆国 91367 カリフォルニア州、  
ウッドランドヒルズ、フライヤー ストリート  
19831  
氏名(名称) レビン、ハリー
4. 代理人  
所 所 〒100 東京都千代田区千代田二丁目2番1号  
理 大 学 研 究 所 ビルディング 331  
理 研 究 所 (21) 3651 (代 表)  
氏 名 (6669) 浅 村 隆 夫
5. 補正書の提出年月日 昭和58年11月 7日
6. 添付書類の目録 補正書の翻訳文 1通



19

## 補正請求の範囲

(1983年11月7日(07.11.83)国際事務局受理;元の請求の範囲1~33を補正請求の範囲1~35で置換える)

1 シランのごとき珪素含有前駆体ガスの熱反応により、珪素及び副生ガス、例えば水素を生成させて珪素珪素を製造するための反応器装置であつて、

反応器空間を通過する壁を有する反応器;

該反応器空間の内部温度が珪素の融解温度を超えるように、反応器の壁を加熱するための加熱要素;

反応器空間内に前駆体ガスを導入し、かつ、加熱された反応器空間内に前駆体ガスが導入されるまで、前駆体ガスの温度をその熱分解温度よりも低く保つために、前記の反応チャンバーの外側に位置を占め、かつ、反応器と作動的に連携した冷却前駆体ガスを導入要素;

副生ガスを反応器空間から排出させるための副生ガス排出要素;及び

生成した珪素を反応器から取出すための、反応器と作動的に連携した珪素排出要素(但し、前記の前駆体ガス導入要素と副生ガス排出要素とは、前駆体ガスの実質的にスムーズな流れが反応器内を流れるような相互関係の下に配置されているものとする);

20

からなることを特徴とする前記の反応器装置。

2 加熱要素が前記の内部温度を約1500~1800℃に保つのに適している、請求の範囲1の反応器装置。

3 加熱要素が前記の内部温度を約1600~1800℃に保つのに適している、請求の範囲2の反応器装置。

4 反応器の壁が、珪素珪素と急速に反応して炭化珪素に変換するカーボン又は黒鉛材料からなる、請求の範囲1の反応器装置。

5 反応器が一つの円筒状からなる、請求の範囲1の反応器装置。

6 反応器が実質的に直立した細長中空体からなり、そして導入要素が細長体の実質的に頂部に前駆体ガスを導入し、反応器内に実質的に軸方向のガスを流させるのに適している、請求の範囲1の反応器装置。

7 珪素珪素排出要素が、細長体の実質的な底部から珪素珪素を重力の作用で流出させるのに適している、請求の範囲6の反応器装置。

8 反応器が細長円筒状中空体からなる、請求の範囲7の反応器装置。

9 導入要素は、効率的に冷却された導入管が含まれてその中で前駆体ガスが流れ、また副生ガスも含まれてその片側が冷却された導入管と接触し、その別の面は加熱された反応器空間に露出し、しかもその露

出面の温度が溶融の融点よりも高温に保たれるのに該融接要素が適している、請求の範囲1の反応器装置。

10. 融接要素がカーボン又は黒鉛の塊状体からなる、請求の範囲9の反応器装置。

11. 導入要素がジャケット要素を具えた銅管からなり、そのジャケット要素内に冷却管を循環させる、請求の範囲9の反応器装置。

12. 直接融接要素にシランガスを熱分解させる反応器装置であつて、

カーボン又は黒鉛材料で作られ、反応器空間を閉む壁を有する隔壁反応器；

前記の反応器空間内の温度を要素の融接温度よりも高く保つための、反応器と作動的に連動した加熱要素；

少なくとも有酸素パーセントのシランガスを含むガス組成物を反応器内へ導入し、反応器内に実質的にスムーズで実質的に軸方向の流れを得るための反応チャンパーの外側に位置を占めたシランガス導入要素であつて、しかも前記のガス組成物が加熱された反応器空間内に入るまで、該ガス組成物をシランガスの分解温度よりも低い温度に保つための冷却要素も含まれている前記の導入要素；

前記の実質的に軸方向のガス流を維持しつつ、未反応ガス及び副生ガスをすべて前記の反応器空間から排出させるために反応器と作動的に連動し、かつ、

その片面は前記の管の吐出し末部に接触し、そして他の面は反応器空間に露出している、請求の範囲17の反応器装置。

19. 反応チャンパー内において、要素含有前駆体ガス組成物を熱反応させて溶融要素を直接製造する方法であつて、

前記のガス組成物の熱反応温度よりも低い第1温度範囲内に前記のガス組成物を保ち；

要素の融点よりも高い第2温度範囲内に前記反応チャンパーを保ち；

前記の反応チャンパーの外側に位置を占める冷却された導入要素を露出して前記のガス組成物を導入することにより、該ガス組成物の温度を前記の第1温度範囲から前記の第2温度範囲に急激に上げ；

反応チャンパー内に前駆体ガス組成物の実質的にスムーズで軸方向の流れを維持し、その間に前駆体ガス組成物が熱反応を受けて溶融要素を生じようとし；

未反応の前駆体ガス組成物及び副生ガスを反応チャンパーから排出させ；そして

溶融要素を反応チャンパーから取出す；

該工程からなることを特徴とする前記の方法。

20. 第2温度範囲が約1500〜1800℃である、請求の範囲19の方法。

21. 第2温度範囲が約1600〜1800℃である、

前記の導入要素から離れた位置に配置されたガス排出要素；及び

溶融要素生成物を反応器から取出すための、反応器と作動的に連動した溶融要素排出要素；

からなることを特徴とする前記の反応器装置。

13. 加熱要素が反応器空間内の温度を約1500〜1800℃に保つのに適している、請求の範囲12の反応器装置。

14. 加熱要素が反応器空間内の温度を約1600〜1800℃に保つのに適している、請求の範囲13の反応器装置。

15. 反応器が実質的に円筒状の中空体からなる、請求の範囲12の反応器装置。

16. 反応器が実質的に直立した細長体であり、導入要素が該細長体の実質的に頂部に配置され、そして溶融要素排出要素が該細長体の実質的に底部に配置されている、請求の範囲12の反応器装置。

17. 導入要素が、加熱された反応器空間の実質的に外側に配置された管を含み、該管が冷却剤によつて冷却され、そして導入要素には、前記の管に連動し、かつ、反応器の加熱された空間にも露出している溶融要素も含まれ、そして溶融要素の露出部分が要素の融接温度よりも実質的に高温である、請求の範囲12の反応器装置。

18. 融接要素がカーボン又は黒鉛の塊状体からなり、

請求の範囲20の方法。

22. 第1温度範囲が35℃未満である、請求の範囲19の方法。

23. 前駆体ガス組成物がシランからなる、請求の範囲19の方法。

24. 前記の冷却された導入要素が1本の管である、請求の範囲19の方法。

25. 前記の前駆体ガスの温度の急激な上昇が、前記の冷却された導入要素から筒手の隔壁に前記のガス組成物を露すことをさらに含み、該隔壁の片面が前記の冷却された導入要素に隣接していて、前記の第1温度範囲内にあり、そしてその反対側の面が前記の反応チャンパーを形成する壁と同一平面上にあつて、前記の第2温度範囲内にある、請求の範囲19の方法。

26. 前記の隔壁が高純度を有する材料で作られている、請求の範囲25の方法。

27. 前駆体ガス組成物がシランからなる、請求の範囲25の方法。

28. 隔壁がカーボン又は黒鉛材料からなり、それにより、溶融要素が隔壁と反応し、その対向する面において炭化残渣に置換する、請求の範囲25の方法。

29. 前記の実質的にスムーズな流れが、導入の管力の方向に実質的に平行な、実質的に軸方向の流れである、請求の範囲19の方法。

30. カーボン又は黒鉛壁で造られた反応器内におい

て、シランガスを熱分解させて溶融残渣を直接製造する方法であつて、

反応器の内面温度を約1500～1800℃に保ち、

少なくとも有重量のシランガスを含むガス組成物を約350℃未満に保ち、

反応器内部の外周にある冷却された導入要素からガス組成物を反応器内部へ急速に導入することにより、ガス組成物の温度を350℃未満から約1500℃を越える温度に急激に上げ、

實質的に一瞬で實質的に物方向のガス組成物の流れを反応器内に維持することにより、シランガスを水素ガス及びすみやかに溶融状態になる固体残渣粒子に熱分解させ、それにより、反応器のカーボン又は焦炭の内壁がその溶融残渣と急速に反応して炭化残渣に交換するようにし、

未反応のガス組成物及び副生水素ガスを反応器から流出させ、そして

生成した溶融残渣を反応器から形状で取出す、閉工程からなることを特徴とする前記の方法。

31. ガス組成物の物方向の流れが、地球の重力の方向に實質的に平行な流下流である、請求の範囲30の方法。

32. 前記の冷却された導入要素が冷却された導入管からなる、請求の範囲30の方法。

33. 温度を急激に上げる工程が、比較的薄手の隔壁を経由してガス組成物を反応器内部へ急速に導入を要し、該隔壁の片面が冷却された導入管に隣接していて導入管と實質的に同じ温度範囲内であり、そして隔壁の別の面は反応器の内壁と同一の平面上にあつて内部と實質的に同じ温度範囲内にある、請求の範囲32の方法。

34. 前記の隔壁が高純度率を有する材料で作られている、請求の範囲33の方法。

35. 隔壁がカーボン又は焦炭からなり、それにより、溶融残渣が隔壁と反応して炭化残渣に交換する、請求の範囲33の方法。

# 国際調査報告

1. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER INT. CL. 4 2018/03731; 0509C 5750 U.S. CL. 423/349; 422/139			
2. FIELD OF SEARCH			
Classification System	Classification System		
US	423/349, 350 118/716 156/018-64 422/139, 156 209 241		
3. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT			
Category	Character of Document	Character of Document	Reference to Class No.
Y, P	US, A, 4,343,772, (Levin et al.) 10 August 1982		1-32
A, P	US, A, 4,342,284, (Loser et al.) 3 August 1982		1-32
A	N, DOE/JPL 954471 79/12, issued 10 December 1979, Manis et al.		4, 10, 28-31
A	N, ERDA/JPL 954471-77/3, issued November 1978, Kapur et al.		4, 10, 28-31
4. SUMMARY OF RELEVANT DOCUMENTS			
<p>1. Summary of relevant documents is as follows:</p> <p>2. The document of US, A, 4,343,772, (Levin et al.) is a patent document which discloses a method for the production of a solid material from a gas mixture. The method involves the rapid heating of a gas mixture to a temperature of about 1500 to 1800 degrees Celsius, followed by the rapid cooling of the resulting solid material. The solid material is then subjected to a further treatment step, which may be a further heating or a further cooling, depending on the desired properties of the final product.</p> <p>3. The document of US, A, 4,342,284, (Loser et al.) is a patent document which discloses a method for the production of a solid material from a gas mixture. The method involves the rapid heating of a gas mixture to a temperature of about 1500 to 1800 degrees Celsius, followed by the rapid cooling of the resulting solid material. The solid material is then subjected to a further treatment step, which may be a further heating or a further cooling, depending on the desired properties of the final product.</p> <p>4. The document of N, DOE/JPL 954471 79/12, issued 10 December 1979, Manis et al., is a technical report which discloses a method for the production of a solid material from a gas mixture. The method involves the rapid heating of a gas mixture to a temperature of about 1500 to 1800 degrees Celsius, followed by the rapid cooling of the resulting solid material. The solid material is then subjected to a further treatment step, which may be a further heating or a further cooling, depending on the desired properties of the final product.</p> <p>5. The document of N, ERDA/JPL 954471-77/3, issued November 1978, Kapur et al., is a technical report which discloses a method for the production of a solid material from a gas mixture. The method involves the rapid heating of a gas mixture to a temperature of about 1500 to 1800 degrees Celsius, followed by the rapid cooling of the resulting solid material. The solid material is then subjected to a further treatment step, which may be a further heating or a further cooling, depending on the desired properties of the final product.</p>			
Date of the International Search Report		Date of the International Search Report	
30 AUGUST 1983		07 SEP 1983	
Inventor's Name		Inventor's Name	
JSA/US		Steven Capella	

Form PCT/ISA/210 (Rev. 10/1982)

International Application No. PCT/US83/00944

FURTHER INFORMATION CONTAINED FROM THE SECOND SHEET	
<p>1. OBSERVATIONS WHERE CERTAIN CLAIMS WERE FOUND UNREMARKABLE</p> <p>The International Searching Authority has found certain claims of the application to be unremarkable. The claims are as follows:</p> <p>1. A method for the production of a solid material from a gas mixture, comprising the steps of: (a) rapidly heating the gas mixture to a temperature of about 1500 to 1800 degrees Celsius; (b) rapidly cooling the resulting solid material; and (c) subjecting the solid material to a further treatment step, which may be a further heating or a further cooling, depending on the desired properties of the final product.</p> <p>2. A method for the production of a solid material from a gas mixture, comprising the steps of: (a) rapidly heating the gas mixture to a temperature of about 1500 to 1800 degrees Celsius; (b) rapidly cooling the resulting solid material; and (c) subjecting the solid material to a further treatment step, which may be a further heating or a further cooling, depending on the desired properties of the final product.</p>	
<p>2. OBSERVATIONS WHERE UNITY OF INVENTION IS LACKING</p> <p>The International Searching Authority has found that the application does not contain a single invention. The reasons for this are as follows:</p> <p>1. The application contains two distinct inventions, each of which is a method for the production of a solid material from a gas mixture. The first invention is defined by claim 1, and the second invention is defined by claim 2. The two inventions are not related to each other, and therefore, the application does not contain a single invention.</p> <p>2. The application contains two distinct inventions, each of which is a method for the production of a solid material from a gas mixture. The first invention is defined by claim 1, and the second invention is defined by claim 2. The two inventions are not related to each other, and therefore, the application does not contain a single invention.</p>	
<p>3. OBSERVATIONS WHERE CERTAIN CLAIMS WERE FOUND UNREMARKABLE</p> <p>The International Searching Authority has found certain claims of the application to be unremarkable. The claims are as follows:</p> <p>1. A method for the production of a solid material from a gas mixture, comprising the steps of: (a) rapidly heating the gas mixture to a temperature of about 1500 to 1800 degrees Celsius; (b) rapidly cooling the resulting solid material; and (c) subjecting the solid material to a further treatment step, which may be a further heating or a further cooling, depending on the desired properties of the final product.</p> <p>2. A method for the production of a solid material from a gas mixture, comprising the steps of: (a) rapidly heating the gas mixture to a temperature of about 1500 to 1800 degrees Celsius; (b) rapidly cooling the resulting solid material; and (c) subjecting the solid material to a further treatment step, which may be a further heating or a further cooling, depending on the desired properties of the final product.</p>	

Form PCT/ISA/210 (Rev. 10/1982)